This Page Is Inserted by IFW Operations and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning documents will not correct images, please do not report the images to the Image Problem Mailbox.

International Patent Class (Additional): H01M-002/02: H01M-002/26:

HO1M-010/40 File Segment: CPI: EPI

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出顧公開番号 特開2000-311665 (P2000-311665A)

(43)公開日 平成12年11月7日(2000.11.7)

(51) Int.Cl.7		識別記号	,	FΙ			5	i7]l*(多考)
H01M	2/06			H01M	2/06		\mathbf{K}	5 H O 1 1
	2/02				2/02	•	K	5H022
	2/26				2/26		Α	5H029
// H01M	10/40		, .		10/40		Z	

審査請求 未請求 請求項の数7 OL (全 9 頁)

(21)出願番号	特膜平11-119967	(71)出顧人	000005968				
			三菱化学株式会社				
(22)出顧日	平成11年4月27日(1999.4.27)		東京都千代田区丸の内二丁目5番2号				
		(72)発明者	河村 裕二				
•			岡山県倉敷市潮通三丁目10番地 三菱化学				
		1	株式会社水島事業所内				
		(72)発明者	齋藤 靖代				
		-	神奈川県横浜市青葉区鴨志田町1000番地				
			三菱化学株式会社横浜総合研究所内				
		(74)代理人	100103997				
•			弁理士 長谷川 曉可				

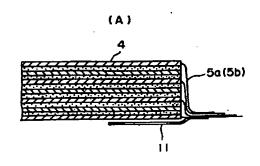
最終質に続く

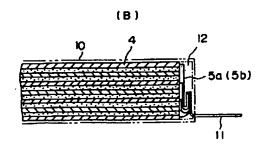
(54) 【発明の名称】 二次電池およびその製造方法

(57)【要約】

【課題】 電池要素をコンパクトに収容でき容積当り電気容量の大きく、かつ、耐久性に優れ安全性の高い二次電池の提供。

【解決手段】 集電体に結合された平板状の複数の正極材と負極材が、イオン性金属成分を含有する非流動性電解質層を介して積層された電池要素を電池収容部材に装填してなる二次電池において、集電体に電流引出線結合用のタブを連設し、正極材と負極材のそれぞれのタブを結束すると共に電流引出線を結合し、かつタブの結束部を電池要素の側壁に沿う方向に折り曲げたことを特徴とする二次電池。





【特許請求の範囲】

【請求項1】 集電体に結合された平板状の複数の正極材と負極材が、イオン性金属成分を含有する非流動性電解質層を介して積層された電池要素を電池収容部材に装填してなる二次電池において、集電体に電流引出線結合用のタブを連設し、正極材と負極材のそれぞれのタブを結束すると共に電流引出線を結合し、かつタブの結束部を電池要素の側壁に沿う方向に折り曲げたことを特徴とする二次電池。

【請求項2】 電流引出線が電池要素側に延びる状態に 10 タブと電流引出線が結合された後、タブの結束部が電池 要素の側壁に沿う方向に折り曲げられると共に電流引出線が電池要素の反対方向に延びるようにされた請求項1 記載の二次電池。

【請求項3】 正極材と負極材のそれぞれのタブの結束 が超音波溶着機によって行なわれた請求項1または2記 載の二次電池。

【請求項4】 イオン性金属成分がリチウムである請求 項1~3いずれかに記載の二次電池。

【請求項5】 電池収容部材が、金属層と合成樹脂層が 積層された複合材からなる請求項1~4いずれかに記載 の二次電池。

【請求項6】 集電体に結合された平板状の複数の正極材と負極材を、イオン性金属成分を含有する非流動性電解質層を介して積層し、得られた電池要素を電池収容部材に装填する二次電池の製造方法において、集電体に電流引出線結合用のタブを連設し、正極材と負極材のそれぞれのタブを結束すると共に結束部に電流引出線を結合し、次いでタブの結束部を電池要素の側壁に沿う方向に折り曲げることを特徴とする二次電池の製造方法。

【請求項7】 タブと電流引出線を、電流引出線が電池 要素側に延びる状態に結合し、次いでタブの結束部を電 池要素の側壁に沿う方向に折り曲げると共に電流引出線 を電池方向と反対方向に延びるようにする請求項6記載 の二次電池の製造方法。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】本発明は二次電池およびその 製造方法に関し、更に詳しくは電池要素を電池収容部材 中にコンパクトに収容でき、容積当り電気容量を高くす 40 ることの可能な二次電池およびその製造方法に関する。

[0002]

【従来の技術】近年、携帯用電子機器の発達に伴って電池の生産が急激に増加しており、また、パーソナルコンピューター、ワープロ等の普及によってそのバックアップ用電池の需要も増大の一途にある。これ等に使用される電池として、充電が可能で長期間使用可能な二次電池の需要が急増しており起電力物質としてリチウムを使用し、これとリチウムをインターカレーションによって吸蔵し得るカーボンあるいはカルコゲン化合物を用いたリ

チウム二次電池が注目されている。

【0003】しかし、リチウムは水に対して極めて活性が高く、液漏れによる発火あるいは空気、湿分の侵入によるリチウムの失活等の問題があり、その封止は高度の密封性が要求される。このようなトラブルを軽減する手段として、正極と負極間に填充される電解液をゲル化剤等を用いて非流動化して液漏れを防止することが行なわれている。その結果、電池要素を被覆するハウジングとしては形状保持のための剛性は必要なくなり、可撓性のフィルムを用いることが可能となって、二次電池の小型化が図れると共に形状の自由度が増加する他、リチウム電池として大きな問題であるデントライトの発生が抑制される等の利点から非流動性電解質を用いた薄型の二次電池が注目されている。

【0004】しかし、高容量でレイト特性のよい二次電池を形成するためには、平板状で薄型の正極材と負極材を多数積層する必要が生じる。例えば、図1に示すように集電体5の表面に正極材1または負極材2を積層して平板状の電極材を形成し、図2に示すように正極材1と負極材2を非流動性電解質層3を介して複数枚積層して大容量の電池とすることが試みられている。かかる積層電池は、図3に示すように正極材1の集電体5の一辺の片側にタブ5aを連設し、また、負極材2の集電体5の同じ辺の他の側にタブ5bを連設すると共に、これを図10に示すように正極材のタブ5aと負極材のタブ5bをそれぞれ上下に結束してこれに電流引出線11を結合することにより、電池収容部材の外側に電極を引き出している。

【0005】しかし、電流引出線11の接続をかかる構 30 造とするときは、タブ5a、5bの結束の際に相手極の 電極材あるいは集電体への接触を避けるために、タブ5 a、5bの結束部を電池要素4の側壁に対して充分な間 隔S1をおいて形成する必要があり、また、機械的、電 気的に強度のある結合を行なうためには結束部の長さS 2 も充分な量を必要とする。このため、電池要素4の側 部に電流引出線取付用の大きな空間を必要とし、電池収 容部材は電池要素4に対して容積の大きなものとなっ て、得られる二次電池は容積当りの電気容量が低下する 結果となる。

[0006]

【発明が解決しようとする課題】本発明は電池要素をコンパクトに収容でき容積当りの電気容量が大きく、かつ、耐久性に優れ安全性の高い二次電池およびその製造方法を提供するものである。

[0007]

【課題を解決するための手段】本発明はかかる課題を解 決するために鋭意検討を行った結果なされたもので、

① 集電体に結合された平板状の複数の正極材と負極材 が、イオン性金属成分を含有する非流動性電解質層を介 して積層された電池要素を電池収容部材に装填してなる

4

二次電池において、集電体に電流引出線結合用のタブを 連設し、正極材と負極材のそれぞれのタブを結束すると 共に電流引出線を結合し、かつタブの結束部を電池要素 の側壁に沿う方向に折り曲げたことを特徴とする二次電 池、および、

② 集電体に結合された平板状の複数の正極材と負極材を、イオン性金属成分を含有する非流動性電解質層を介して積層し、得られた電池要素を電池収容部材に装填する二次電池の製造方法において、集電体に電流引出線結合用のタブを連設し、正極材と負極材のそれぞれのタブを結束すると共に結束部に電流引出線を結合し、次いでタブの結束部を電池要素の側壁に沿う方向に折り曲げることを特徴とする二次電池の製造方法を提供するものである。

[0008]

【発明の実施の形態】本発明二次電池は、集電体に電気的に結合した正極材と負極材が非流動性電解質層を介して積層されると共にイオン性金属成分を含有した電池要素を、収容部材に装填して封止される。イオン性金属成分とは、イオンとなって二次電池の充電・放電に電気化学的に関与し、起電力を発生する金属成分で通常リチウムが用いられる。以下リチウム二次電池を例に本発明を説明する。

【0009】正極材1あるいは負極材2は、従来と同様に図1に示すように集電体5と結合するように板状に形成される。集電体5との結合は、集電体5を芯材としてその両面に電極材を積層することによって行なうことができる。目的に応じて集電体の片面のみに形成したものであってもよい。集電体5としては、一般的にアルミ箔や銅箔などの金属箔を用いることができる。厚みは適宜選択されるが好ましくは1~30μmである。薄すぎると機械的強度が弱くなり、生産上問題になる。厚すぎると貫池全体としての容量が低下する。

【0010】これら集電体表面には予め粗面化処理を行うと電極材の接着強度が高くなるので好ましい。表面の粗面化方法としては、機械的研磨法、電解研磨法または化学研磨法が挙げられる。機械的研磨法としては、研磨剤粒子を固着した研磨布紙、砥石、エメリバフ、鋼線などを備えたワイヤーブラシなどで集電体表面を研磨する方法が挙げられる。また接着強度や導電性を高めるために、集電体表面に中間層を形成してもよい。また、集電体5の形状は、板状であってもよく、網状体、あるいはパンチングメタル等であってもよい。

【0011】正極材としては、リチウムイオンを吸蔵・放出可能であれば無機化合物でも有機化合物でも使用できる。無機化合物として、遷移金属酸化物、リチウムと遷移金属との複合酸化物、遷移金属硫化物等のカルコゲン化合物等が挙げられる。ここで遷移金属としてはFe、Co、Ni、Mn等が用いられる。具体的には、MnO、V2O5、V6O13、TiO2等の遷移金属酸化

物、ニッケル酸リチウム、コバルト酸リチウム、マンガ ン酸リチウムなどのリチウムと遷移金属との複合酸化 物、TiS2、FeS、MoS2などの遷移金属硫化物 等が挙げられる。これらの化合物はその特性を向上させ るために部分的に元素置換したものであってもよい。有 機化合物としては、例えばポリアニリン、ポリピロー ル、ポリアセン、ジスルフィド系化合物、ポリスルフィ ド系化合物等が挙げられる。正極材として、これらの無 機化合物、有機化合物を混合して用いてもよい。好まし くは、コバルト酸リチウムまたはマンガン酸リチウム等 のマンガンやコバルトを含有する化合物、特にマンガン を含有する化合物である。正極材の粒径は、それぞれ電 池の他の構成要素とのかねあいで適宜選択すればよい が、通常1~30μm、特に1~10μmとするのが初 期効率、サイクル特性等の電池特性が向上するので好ま しい。

【0012】負極に用いることができるリチウムイオンの吸蔵放出可能な負極材としては、通常、グラファイトやコークス等の炭素系物質が挙げられる。斯かる炭素系物質は、金属、金属塩、酸化物などとの混合体や被覆体の形態で利用することもできる。また、負極材としては、ケイ素、錫、亜鉛、マンガン、鉄、ニッケル等の酸化物や硫酸塩、金属リチウム、Li-Al、Li-Bi-Cd、Li-Sn-Cd等のリチウム合金、リチウム電移金属窒化物、シリコン等も使用できる。好ましくは、容量の面からグラファイトまたはコークスである。は、容量の面からグラファイトまたはコークスである。負極材の平均粒径は、初期効率、レイト特性、サイクル特性などの電池特性の向上の観点から、通常12 μ m以下、好ましくは10 μ m以下とする。この粒径が大きすぎると電子伝導性が悪化する。また、通常は0.5 μ m以上、好ましくは7 μ m以上である。

【0013】これらの正極材および負極材は通常集電体 上に結着されるため、バインダーを使用することが好ま しい。バインダーとしてはシリケート、ガラスのような 無機化合物や、主として高分子からなる各種の樹脂が使 用できる。樹脂としては、例えば、ポリエチレン、ポリ プロピレン、ポリー1、1-ジメチルエチレンなどのア ルカン系ポリマー;ポリブタジエン、ポリイソプレンな どの不飽和系ポリマー;ポリスチレン、ポリメチルスチ レン、ポリビニルピリジン、ポリーN-ビニルピロリド ンなどの環を有するポリマー;ポリメタクリル酸メチ ル、ポリメタクリル酸エチル、ポリメタクリル酸プチ ル、ポリアクリル酸メチル、ポリアクリル酸エチル、ポ リアクリル酸、ポリメタクリル酸、ポリアクリルアミド などのアクリル系ポリマー;ポリフッ化ビニル、ポリフ ッ化ビニリデン、ポリテトラフルオロエチレン等のフッ 素系樹脂;ポリアクリロニトリル、ポリビニリデンシア ニドなどのCN基含有ポリマー;ポリ酢酸ビニル、ポリ ビニルアルコールなどのポリビニルアルコール系ポリマ 50 一;ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデンなどのハロゲ

6

ン含有ポリマー;ポリアニリンなどの導電性ポリマーなどが使用できる。また上記のポリマーなどの混合物、変性体、誘導体、ランダム共重合体、交互共重合体、グラフト共重合体、ブロック共重合体などであっても使用できる。

【0014】電極中には必要に応じて導電材料、補強材など各種の機能を発現する添加剤、粉体、充填材などを含有していてもよい。導電材料としては、上記活物質に適量混合して導電性を付与できるものであれば特に制限は無いが、通常、アセチレンブラック、カーボンブラック、黒鉛などの炭素粉末や、各種の金属のファイバー、箔などが挙げられる。添加剤としてはトリフルオロプロピレンカーボネート、ビニレンカーボネート、1,6ーDioxaspiro[4,4]nonane-2,7ーdione、12-クラウン-4-エーテルなどが電池の安定性、寿命を高めるために使用することができる。補強材としては各種の無機、有機の球状、繊維状フィラーなどが使用できる。

【0015】電極材100重量部に対するバインダーの 配合量は好ましくは0.1~30重量部、さらに好まし くは1~15重量部である。樹脂の量が少なすぎると電 極の強度が低下する。樹脂の量が多すぎると電極中の空 隙量が低下し、後述するイオン移動相の占める割合が低 下する。正極材や負極材を集電体上に形成する手法とし ては、例えば、粉体状の電極材をバインダーとともに溶 剤と混合し、ボールミル、サンドミル、二軸混練機など により分散塗料化したものを、集電体上に塗布して乾燥 する方法が好適に行なわれる。この場合、用いられる溶 剤の種類は、電極材に対して不活性であり且つパインダ ーを溶解しうる限り特に制限されず、例えばNーメチル ピロリドン等の一般的に使用される無機、有機溶剤のい ずれも使用できる。また、電極材をバインダーと混合し 加熱することにより軟化させた状態で、集電体上に圧 着、あるいは吹き付ける手法によって電極材層を形成す ることもできる。さらには電極材を単独で集電体上に焼 成することによって形成することもできる。

【0016】正極材、負極材内には通常イオン移動相が形成される。電極中におけるイオン移動相の占める割合は、高い方がイオン移動が容易になり、レイト特性上は好ましい一方で低い方が容量的には高くなる。好ましくは10~50体積%である。また、正極材および負極材の膜厚は容量的には厚い方が、レイト上は薄い方ががよしい。膜厚は通常20 μ m以上、好ましくは30 μ m以上、さらに好ましくは50 μ m以上、最も好ましくは 0 μ m以上である。一方、電極膜厚の上限としては80 μ m以上である。一方、電極膜厚の上限としては80 μ m以上である。イオン移動相の材料としては、後述する非流動性電解では、電極が、電極材とその中に形成されるイオン移動相とからなる場合について説明したが、勿論、電極とし

ての機能を有する限りその構造に制限はなく、例えば負極をリチウム金属のみで負極とすることもできる。

【0017】正極材1と負極材2間に介装する非流動性 電解質層3としては、通常の電解液と同様に正極と負極 を電気化学的に結合する機能を有し、流動性が低く形状 保持性を有するものが使用される。非流動性電解質層に 用いられる支持電解質としては、電解質として正極材お よび負極材に対して安定であり、かつリチウムイオンが 正極材あるいは負極材と電気化学反応をするための移動 をおこない得る非水物質であればいずれのものでも使用 することができる。具体的にはLiPF6、LiAsF6、LiSbF6、LiBF4、LiClO4、LiI、LiBr、LiCl、LiAlCl、LiHF2、LiSCN、LiSO3CF2等のリチウム塩が挙げら れる。これらのうちでは特にLiPF6、LiClO4が好適である。

【0018】これら支持電解質を非水系溶媒に溶解した状態で用いる場合の濃度は、一般的に0.5~2.5m ol/Lである。これら支持電解質を溶解する非水系溶媒は特に限定されないが、比較的高誘電率の溶媒が好適に用いられる。具体的にはエチレンカーボネート、プロピレンカーボネート等の環状カーボネート類、ジメチルカーボネート、ジエチルカーボネート、エチルメチルカーボネートなどの非環状カーボネート類、テトラヒドロフラン、2ーメチルテトラヒドロフラン、ジメトキシエタン等のグライム類、γープチロラクトン等のラクトン類、スルフォラン等の硫黄化合物、アセトニトリル等のニトリル類等が挙げられる。またこれらの1種または2種以上の混合物を使用することができる。

【0019】これらのうちでは、特にエチレンカーボネート、プロピレンカーボネート等の環状カーボネート、類、ジメチルカーボネート、ジエチルカーボネート、エチルメチルカーボネートなどの非環状カーボネート類から選ばれた1種または2種以上の溶媒が好適である。またこれらの分子中の水素原子の一部をハロゲンなどに置換したものも使用できる。またこれらの溶媒に、添加剤などを加えてもよい。添加剤としては例えば、トリフルオロプロピレンカーボネート、ビニレンカーボネート、1,6-Dioxaspiro[4,4]nonane-2,7-dione、12-クラウン-4-エーテルなどが電池の安定性、性能、寿命を高める目的で使用できる。

【0020】非流動性電解質層として、ゲル状の電解質を用いることができる。ゲル状電解質とは、主として支持電解質と溶媒とを含有する電解液に、ゲル化のための高分子を含み、電解液が高分子のネットワーク中に保持されて全体としての流動性が著しく低下したものである。イオン伝導性などの特性は通常の電解液に近い特性を示すが、流動性、揮発性などは著しく抑制され、安全性が高められている。ゲル状電解質中の高分子の比率は

40

50

8

好ましくは1~50%である。低すぎると電解液を保持することができなくなり、液漏れが発生する。高すぎるとイオン伝導度が低下して電池特性が悪くなる。

【0021】ゲル状電解質層を形成させるためには、モノマーを含有する電解質原料を使用し、これを重合ささすな反応をおこな方法を挙げることができる。このような反応をおこなえる高分子としては、ポリエステル、ポリアミド、ポリカーボネート、ポリイミドなどの重縮合によって生成されるもの、ポリウレタン、ポリウレタン、ポリウレタン、ポリウレタン、ポリウレタン、ポリウレタン、ポリウレタン、ポリウレタン、ポリウレタン、ポリカーボネート、ポリイミドなどの重縮合によって生成されるもの、ポリメタク酸ビニル、ポリ塩化ビニルなどのポリビニル系などの付加重合で生成されるものなどがあるが、重合の制御が容易で重合時に副生成物が発生しない付加重合により生成される高分子を使用することが望ましい。特に反応性不飽和基を有するモノマーを重合する方法は、生産性に優れ好ましい。

【0022】このような反応性不飽和基を有するモノマ 一の例としてはアクリル酸、アクリル酸メチル、アクリ ル酸エチル、エトキシエチルアクリレート、メトキシエ チルアクリレート、エトキシエトキシエチルアクリレー ト、ポリエチレングリコールモノアクリレート、エトキ シエチルメタクリレート、メトキシエチルメタクリレー ト、エトキシエトキシエチルメタクリレート、ポリエチ レングリコールモノメタクリレート、N, Nージエチル アミノエチルアクリレート、N, N-ジメチルアミノエ チルアクリレート、グリシジルアクリレート、アリルア クリレート、アクリロニトリル、Nーピニルピロリド ン、ジエチレングリコールジアクリレート、トリエチレ ングリコールジアクリレート、テトラエチレングリコー ルジアクリレート、ポリエチレングリコールジアクリレ ート、ジエチレングリコールジメタクリレート、トリエ チレングリコールジメタクリレート、テトラエチレング リコールジメタクリレート、ポリエチレングリコールジ メタクリレートなどが使用でき、反応性、極性、安全性 などから好ましいものを単独、または組み合わせて用い ればよい。

【0023】これらのモノマーを重合する方法としては、熱、紫外線、電子線などによる手法があるが、生産性の高さから紫外線または熱による手法が有効である。この場合反応を効果的に進行させるため、電解液に紫外線を反応する重合開始剤をいれておくこともできる。利用できる紫外線重合開始剤としては、ベンゾイン、ベンジル、アセトフェノン、ベンソフェノン、ミヒラーケトン、ビアセチル、ベンゾイルパーオキサイドなどが使用でき、反応性、極性、安全性などから好ましいものを単独、または組み合わせて用いればよい。また熱による重合では、反応の速度の制御が容易で、特に熱重合開始剤の種類、量、モノマー量とモノマー中の反応基数、種類を変えることにより、ゲルの構造制御ができイオン伝導

度などを向上させることができる。また全体の反応が一 様に進むため均一なゲルができる。

【0024】熱重合に際して、反応を制御するため、重合開始剤をいれておくこともできる。利用できる熱重合開始剤としては、1,1-ジ(ターシャリプチルパーオキシ)-3,3,5-トリメチルシクロヘキサン、2,2-ビス-[4,4-ジ(ターシャリプチルパーオキシシクロヘキシル)プロパン]、1,1-ジ(ターシャリプチルパーオキシ)-シクロヘキサン、ターシャリプチルパーオキシ)-シクロヘキサン、ターシャリプチルパーオキシ)-シクロヘキサン、ターシャリプチルパーオキシー2-エチルヘキサノネート、ターシャリプチルパーオキシー2-エチルヘキサノネート、ジベンゾイルパーオキサイドなどが使用でき、反応性、極性、安全性などから好ましいものを単独、または組み合わせて用いればよい。

【0025】また、ゲル状電解質層を形成させるために 冷却によってゲル化可能な高分子が含有された電解質原 料を使用し常温迄高分子を冷却する方法も採用すること ができる。この場合使用できる高分子としては、電解液 に対してゲルを形成し、電池材料として安定なものであ ればどのようなものであっても使用できるが、例えばポ リビニルピリジン、ポリーN-ビニルピロリドンなどの 環を有するポリマー;ポリメタクリル酸メチル、ポリメ タクリル酸エチル、ポリメタクリル酸プチル、ポリアク リル酸メチル、ポリアクリル酸エチル、ポリアクリル 酸、ポリメタクリル酸、ポリアクリルアミドなどのアク リル系ポリマー;ポリフッ化ビニル、ポリフッ化ビニリ デン等のフッ素系樹脂;ポリアクリロニトリル、ポリビ ニリデンシアニドなどのCN基含有ポリマー;ポリ酢酸 ビニル、ポリビニルアルコールなどのポリビニルアルコ ール系ポリマー;ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン などのハロゲン含有ポリマーなどが挙げられる。また上 記のポリマーなどの混合物、変性体、誘導体、ランダム 共重合体、交互共重合体、グラフト共重合体、プロック 共重合体などであっても使用できる。

【0026】リチウム電池に使用される電解液、電解質は極性を有するのが通常であるから、上記いずれの方法であっても高分子がある程度の極性を有する方が好ましい。これらの高分子の分子量は好ましくは10000~50000の範囲である。分子量が低いとゲルを形成しにくくなる。分子量が高いと粘度が高くなりすぎて取り扱いが難しくなる。高分子の電解液に対する濃度は、分子量に応じて適宜選べばよいが、好ましくは0.1重量%から30重量%である。濃度が0.1重量%以下ではゲルを形成しにくくなり、電解液の保持性が低下して流動、液漏れの問題が生じることがある。濃度が30重量%以上になると粘度が高くなりすぎて工程上困難を生じるとともに、電解液の割合が低下してイオン伝導度が低下しレート特性などの電池特性が低下することがある。

【0027】電解質層として固体状の電解質層を用いる

こともできる。固体電解質としては、これまで知られている種々の固体電解質を用いることができる。例えば、上述のゲル状電解質で用いられる高分子と支持電解質塩を適度な比で混合して形成することができる。この場合、伝導度を高めるため、高分子は極性が高いものを使用し、側鎖を多数有するような骨格にすることが好ましい。非流動性層として、ゲル状電解質、固体電解質を多孔性膜等のスペーサに含浸したものを用いてもよい。電解質層の厚みは、通常5~200μm、好ましくは10~100μmである。

【0028】多孔性膜としては、具体的には厚さ1μm以上、好ましくは5μm以上、また通常200μm以下、空孔率30~85%のポリオレフィンまたは水素原子の一部もしくは全部がフッ素置換されたポリオレフィン膜を使用することができる。具体的には、ポリオレフィン等の合成樹脂を用いて形成した微多孔性膜、不織布、織布等を用いることができる。

【0029】かかる正極材1、負極材2および非流動性 電解質層3からなる電池要素4は、目的に応じた構造と することができる。例えば、図1に示すように、集電体 5に正極材組成物を積層して板状の正極材1を得る。負 極材2も同様の手法で板状に成形され、板状に成形され た正極材1と負極材2は、図2に示すように、非流動性 電解質層3を介して交互に積層される。また、必要に応 じては、正極材1、非流動性電解質層3および負極材2 が積層された単電池要素ユニットを図4に示すように正 極材1側あるいは負極材2側がそれぞれ接する方向に積 み重ねることもできる。

【0030】電極材の平面形状は任意であり、四辺形、 円形、多角形等にすることができる。集電体5には、電 流引出線結合用のタブ5a、5bが連設される。電極材 が四辺形であるときは、図3に示すように電極材の一辺 の片側に正極材1より突出するタブ5aを形成し、ま た、負極材2の集電体5にも同じ辺の反対側にタブ5b を形成して、突出形成されたタブ5aとタブ5bの夫々 を上下に結合して正極と負極の電流引出線結合端子を形 成することによって大容量の電池要素4とされる。

【0031】しかして、本発明においては、タブ5a、 5bの結合部を電池要素4の側壁に沿った方向に折り曲 げるところに特徴を有する。すなわち、本発明は図5

(A) に示すように正極材1、非流動性電解質層3および負極材2を積層すると共にタブ5a、5bを夫々上下に集合させて結束すると共に電流引出線11を結合する。タブ5a、5bの結合は、超音波溶着機による溶着によって行なうことができ、タブ5a、5bと電流引出線11の結合はスポット溶接等の抵抗溶接、超音波溶着あるいはレーザ溶接によって行なうことができる。

【0032】タブ5a、5bと電流引出線11は、図5 (A)に示すように、電流引出線11が電池要素4側に 延びるように重ねられて結合された後、タブ5a、5b あるいは電流引出線11の先端の不要な部分が切断され、結束部は、図5(B)に示すように、電池要素4aの側壁に沿う方向に位置するように折り曲げられる。なお、電流引出線11は電池要素4の反対方向に延びるように結合してこれを折り曲げることによって形成することも可能であるが、この場合は、タブ5a、5bの先端不要部と電流引出線11の先端不要部分の切断を結合前に、かつ、それぞれを別工程によって行なう必要が生じるため、電流引出線11は電池要素4側に延びるように10結合し、タブ5a、5bと電流引出線11の先端不要部を同時に切断することが望ましい。

【0033】12は、タブ5a、5bの結束部を外圧から保護するためのスペーサで、吸湿剤等を含有する材料を用いることにより電池要素4を湿分から保護する機能を持たせることができる。こうして電流引出線11が結合された電池要素4は、電池収容部材内に装填されて封止される。電池収容部材の形状は特に制限はなく、機械的強度を有し密封性を有するものであればいかなる構造であってもよいが、例えば図6に示すように2枚の複合材6、6間に電池要素4を介装してその周囲を溶封してもよく、図7に示すように合成樹脂等のシート状体13の一部に絞り加工を施して電池要素4を収容する収容部を形成して収容部材10とすることができる。

【0034】収容部材10としては、アルミニウム、ニッケルメッキをした鉄、銅等の金属、合成樹脂等を用いて成形することができるが、好ましくは金属と合成樹脂が積層された複合材が用いられる。複合材6としては、図8(A)に示すように、金属層7と合成樹脂層8が積層されたものを使用することができる。複合材6における金属層7は水分の浸入の防止あるいは形状保持性を維持させるもので、アルミニウム、鉄、銅、ニッケル、チタン、モリブデン、金、等の単体金属やステンレス、ハステロイ、等の合金、または酸化アルミニウム等の金属酸化物でもよい。特に加工性の優れたアルミニウムが好ましい。金属層7の形成は、金属箔、金属蒸着膜、金属スパッター等を用いて行なうことができる。

【0035】本発明において合成樹脂は、収容部材の保護あるいは電解質による浸触を防止するもので、本発明において合成樹脂は、弾性率、引張り伸び率は制限されるものではない。従って本発明における合成樹脂は一般にエラストマーと称されるものも含むものとする。合成樹脂としては、熱可塑性プラスチック、熱可塑性エラストマー類、熱硬化性樹脂、プラスチックアロイが使われる。これらの樹脂にはフィラー等の充填材が混合されているものも含んでいる。

【0036】また、複合材6は、図8(B)に示すように金属層7の外側面に保護層として機能するための合成樹脂層8aと、内側面に電解質による腐蝕を防止するための耐蝕層として機能する合成樹脂層8bを積層した三 50 層構造体とすることができる。この場合、保護層に使用

する樹脂は、好ましくはポリエチレン、ポリプロピレ ン、変性ポリオレフィン、アイオノマー、非晶性ポリオ レフィン、ポリエチレンテレフタレート、ポリアミド等 耐薬品性や機械的強度に優れた樹脂が望ましい。耐蝕層 としては、耐薬品性の合成樹脂が用いられ、例えばポリ エチレン、ポリプロピレン、変性ポリオレフィン、アイ オノマー、エチレン-酢酸ビニル共重合体、等を用いる ことができる。

11

【0037】また、複合材6は図9に示すように金属層 7と保護層形成用合成樹脂8a、耐蝕層形成用合成樹脂 層8b間にそれぞれ接着剤層9を設けることもできる。 これ等の金属、合成樹脂あるいは複合材を用いて収容部 材10が形成される。収容部材10の成形はフィルム状 体の周囲を融着して形成してもよく、シート状体を真空 成形、圧空成形、プレス成形等によって絞り成形しても よい。また、合成樹脂を射出成形することによって成形 することもできる。射出成形によるときは、金属層はス パッタンリング等によって形成される。

[0038]

【発明の効果】本発明はかかる構成からなるから、タブ 20 5 a, 5 b の結束のための空間を小さくすることができ、従って、 電池要素の収容部材を小さくすることができるから、容 積当りの電気容量の大きな二次電池を得ることができ、 また、封止性も優れた二次電池とし得るから安全で耐久 性の優れた二次電池を得ることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】電極材の縦断面図

【図2】電極材を積層した電池要素の縦断面図

【図3】図2の電池要素の平面図

【図4】 電池要素の他の例を示す縦断面図

【図5】(A)(B)は、タブを電流引出線と結合し、

本発明構造とする工程を示す縦断面図

【図6】電池要素が収容部材に封止された二次電池を示 す斜視図

【図7】収容部材の他の例を示す斜視図

【図8】(A)(B)はそれぞれ収容部材を形成する複 合材を示す縦断面図

【図9】複合材の他の例を示す縦断面図

【図10】従来の電流引出線結合部を示す斜視図 【符号の説明】

1 正極材

2 負極材

3 非流動性電解質層

4 電池要素

集電体

6 複合材

7 金属層

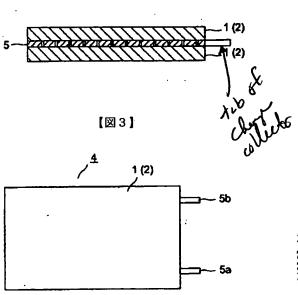
8, 8a, 8b

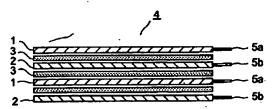
10 収容部材

11 電流引出線

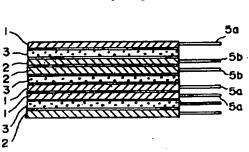
12 スペーサ

【図1】

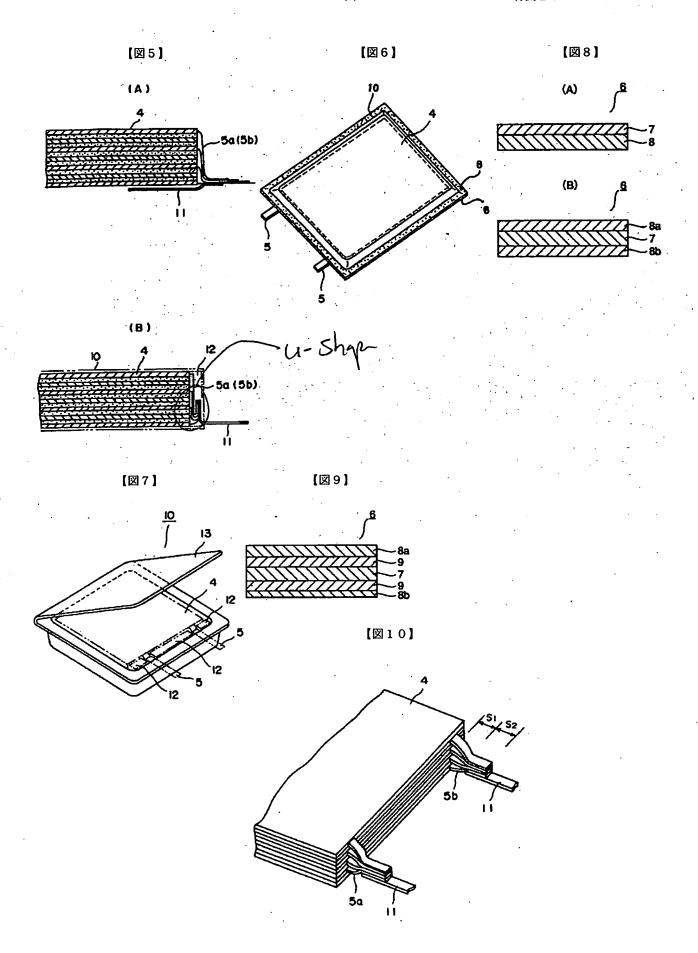




【図2】



【図4】



フロントページの続き

(72) 発明者 町野 洋

神奈川県横浜市青葉区鴨志田町1000番地 三菱化学株式会社横浜総合研究所内 「ターム(参考) 5H011 AA03 AA17 BB03 CC02 CC06

CC10 DD06 DD13 EE04 FF04

GG09 HH02

5H022 AA09 BB02 BB17 CC03 CC05

CC12 CC15 CC20 CC24

5H029 AJ03 AJ15 AK02 AK03 AK05

AK16 AL01 AL02 AL06 AL07

· AL12 AM02 AM03 AM04 AM05

AMO7 AM16 BJ04 BJ12 CJ03

CJ05 DJ02 DJ05 EJ01 EJ12

HJ12